

С. Н. Орлов, М. М. Костин, Р. В. Фоменков, Ю. В. Цапко

СОЗДАНИЕ СТЕНДОВ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКОЙ СТАБИЛЬНОСТИ КРЕМНИЙОРГАНИЧЕСКОЙ ЖИДКОСТИ ФМ-1

В ходе работы созданы специальные стенды нейтронного облучения на основе рабочих источников нейтронов. Определен энергетический спектр и плотность нейтронных потоков. Стенд использован для изучения физико-химической стабильности кремнийорганической жидкости ФМ-1.

Ключевые слова: *нейтронное облучение, физико-химическая стабильность, кремнийорганическая жидкость*

During the work, the special stands of neutron irradiation are created on the basis of working neutron sources. The energy spectrum and flux density of neutron radiation are detected. The stand used to study physico-chemical stability of the silicone fluid FM-1.

Keywords: *neutron irradiation, physical-chemical stability, silicone fluid.*

В ходе проведения работ по созданию перспективных ядерных энергетических установок специалистами ФГУП «НИТИ им. А. П. Александрова» было проведено исследование нового класса радиационно-стойких жидкостей для вспомогательных систем — метилфенилсилоксановых масел, в частности жидкости ФМ-1.

Жидкость ФМ-1 представляет собой смесь 1,3,5-триметил-1,1,3,5,5-пентафенилтрисилоксана (линейный тример, 70 % по массе) и 1,3,5,7-тетраметил-1,1,3,5,7,7-октафенилтетрасилоксана (линейный тетрамер, 30 % по массе) с примесями 1,3-диметил-1,1,3,3-тетрафенилдисилоксана (линейный димер) и 1,3,5-триметил-1,3,5-трифенилциклотрисилоксана (циклический тример). Интерес к данной жидкости обусловлен комплексом ее уникальных свойств: высокой температурой кипения, низкой упругостью паров при рабочих температурах, незначительным коррозионным воздействием на конструкционные материалы, слабой активацией под воздействием нейтронного потока [1–3].

В 2013 году авторами данной работы, была исследована устойчивость жидкости ФМ-1 по отношению к нагреванию и γ -излучению. Было показано, что при заданных уровнях воздействия, силоксановая жидкость сохраняет стабильность химического состава и физико-химических свойств. Полученные результаты подтвердили применимость ФМ-1 во вспомогательных системах ЯЭУ.

Следующим этапом изучения радиационной стойкости ФМ-1 являлось исследование стабильности жидкости при монофакторном воздействии нейтронного потока. Решение поставленной задачи потребовало создания специализированного

стенда, позволяющего проводить нейтронное облучение исследуемых образцов в отсутствии реакторного гамма-излучения.

В качестве источника нейтронов для стенда было предложено использовать рабочий источник нейтронов типа 55НК252М12.29 на основе изотопа ^{252}Cf , находящийся в НИТИ на хранении. Данное предложение позволило не только создать востребованный в отрасли инструмент исследования физико-химических свойств материалов, но и рационализировать использование дорогостоящего рабочего источника нейтронов, выгруженного из реакторной установки.

Создание специализированного стенда нейтронного облучения на основе рабочего источника нейтронов типа 55НК252М12.29 включало следующие этапы:

- Разработку конструкторских решений и изготовление стенда нейтронного облучения.
- Определение энергетического спектра нейтронов стенда.

Принципиальная схема стенда нейтронного облучения представлена на рис. 1.

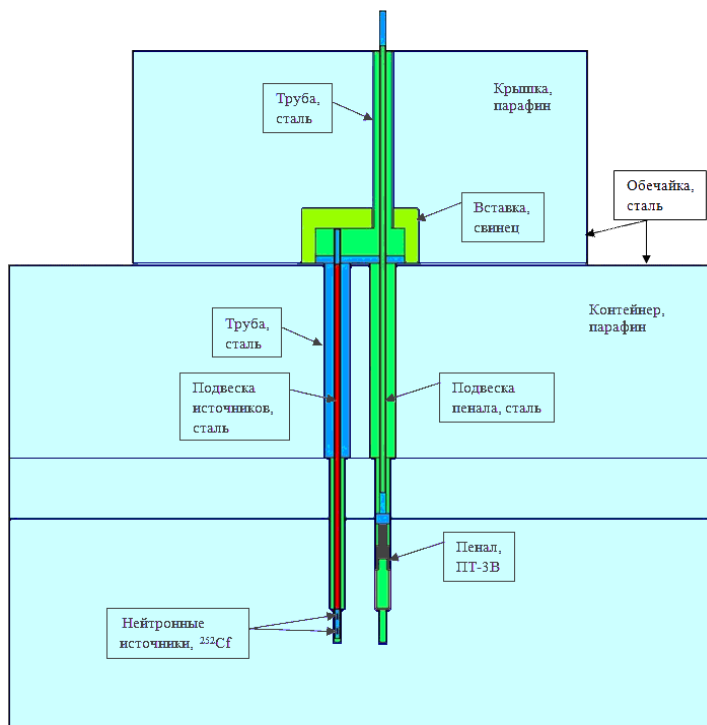


Рис. 1. Принципиальная схема стенда нейтронного облучения

Основой стенда является контейнер хранения источника и сам источник. Контейнер представляет собой емкость большого объема, заполненную парафином, в которой имеются два канала. При проведении облучения, в один из каналов стенда помещают исследуемые образцы, в другой — рабочий источник нейтронов.

Использование созданного стенда для проведения исследовательских работ потребовало определение его энергетического спектра нейтронов. Расчет плотности потоков нейтронов проводился с использованием прецизионного кода MCNP, реализующего метод Монте-Карло. Источником ядерно-физических констант являлась библиотека ENDF/B-VII, при подготовке сечений в формате MCNP (в непрерывном по энергии представлении) использовались шаблоны входных данных модулей NJOY. В результате расчета были получены плотности потоков нейтронов (в 300-групповом представлении) в свободном и заполненном жидкостью ФМ-1 объеме пенала. Рассчитанные энергетические спектры нейтронов представлены на рис. 2.

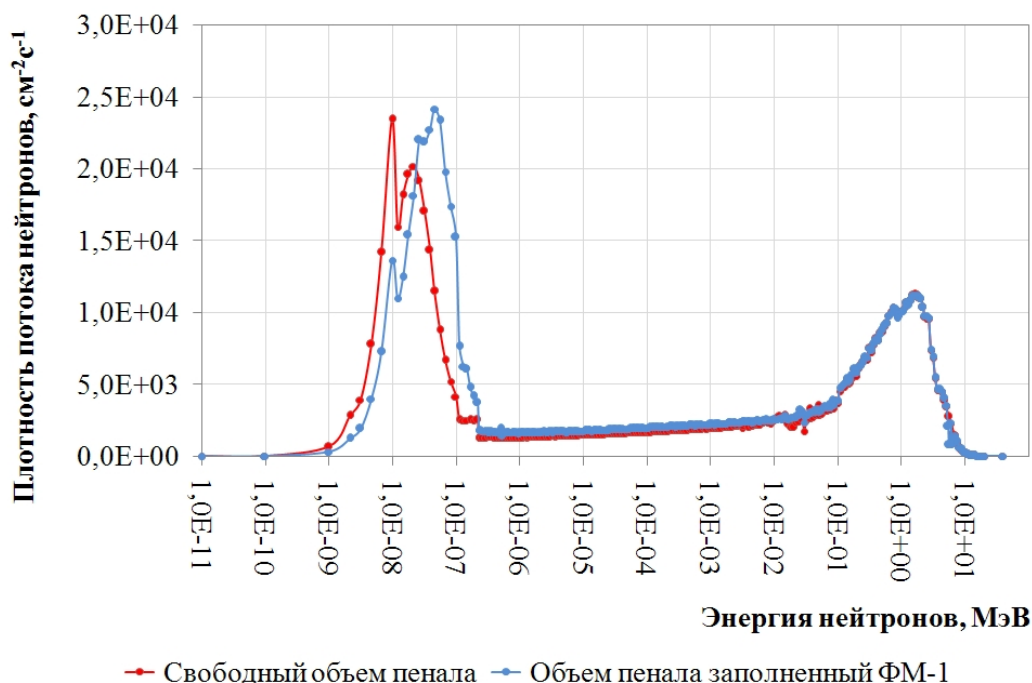


Рис. 2. Энергетический спектр нейтронов стенда

В результате интегрирования рассчитанного энергетического спектра получено, что поток тепловых нейтронов при облучении образцов на стенде составляет $2,5 \cdot 10^5$ нейтр./($\text{см}^2 \cdot \text{с}$), промежуточных — $4,0 \cdot 10^5$ нейтр./($\text{см}^2 \cdot \text{с}$), быстрых — $3,8 \cdot 10^5$ нейтр./($\text{см}^2 \cdot \text{с}$).

Верификация расчетных результатов осуществлялась путем их сравнения с экспериментально определенными активностями нуклидов, образовавшихся при нейтронной активации на стенде облучения растворов неорганических солей и активационных мишеней из набора АКН-Т. Экспериментальные результаты и соответствующие им расчетные значения представлены в табл. 1.

Таблица 1

Экспериментальные результаты и результаты расчетного моделирования

Реакция	Облучаемая мишень	Положение мишени в пенале*	Активность активированного нуклида на момент окончания облучения, Ки	
			расчетная	экспериментальная
$^{63}\text{Cu} (n,\gamma) ^{64}\text{Cu}$	Медь (2Cu/159)	«лежа»	$7,2 \cdot 10^{-9}$	$6,8 \cdot 10^{-9}$
$^{63}\text{Cu} (n,\gamma) ^{64}\text{Cu}$	Медь (2Cu/160)	«основное»	$7,1 \cdot 10^{-9}$	$6,6 \cdot 10^{-9}$
$^{197}\text{Au} (n,\gamma) ^{198}\text{Au}$	Золото (2Au/560)	«лежа»	$8,6 \cdot 10^{-9}$	$9,3 \cdot 10^{-9}$
$^{197}\text{Au} (n,\gamma) ^{198}\text{Au}$	Золото (2Au/556)	«основное»	$1,2 \cdot 10^{-8}$	$1,2 \cdot 10^{-8}$
$^{58}\text{Ni} (n,p) ^{58}\text{Co}$	Раствор солей Ni	–	$6,9 \cdot 10^{-10}$	$5,1 \cdot 10^{-10}$
$^{24}\text{Mg} (n,p) ^{24}\text{Na}$	Раствор солей Mg	–	$4,2 \cdot 10^{-10}$	$4,2 \cdot 10^{-10}$

* «лежа» — параллельно дну канала, «основное» — перпендикулярно

Из сравнительного анализа активностей нуклидов, приведенных в табл. 1, видно, что экспериментальные и расчетные значения полностью согласуются между собой с учетом погрешности измерений. Таким образом, проведенная верификация расчетных результатов подтверждает адекватность определения нейтронно-физических условий облучения на стенде.

После определения нейтронно-физических условий облучения, созданный стенд был использован для исследования радиационной устойчивости образцов жидкости ФМ-1 при монофакторном действии нейтронного потока. Для этого, образцы жидкости помещали в специальные пеналы (емкости), изготовленные из слабоактивируемого материала — титанового сплава ПТ-3В. Пеналы герметизировали и продували аргоном. Давление аргона в пеналах перед облучением составляло от 0,23 до 0,24 МПа. Облучение образцов проводилось в статических условиях при температуре $(25 \pm 5) ^\circ\text{C}$.

В табл. 2 представлены условия облучения пяти образцов жидкости ФМ-1.

Таблица 2

Условия облучения проб жидкости ФМ-1

Образец		P1H	P2H	P3H	P4H	P5H
Масса образца жидкости, г		40,01	39,99	39,99	39,99	40
Время облучения, ч		168	339	676	1487	2299
Флюенс нейтронов, нейтр./см ²	тепловых (0,005...0,5 эВ)	$1,5 \cdot 10^{11}$	$3,0 \cdot 10^{11}$	$6,0 \cdot 10^{11}$	$1,3 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{12}$
	промежуточных (0,5 эВ...200 кэВ)	$2,4 \cdot 10^{11}$	$4,9 \cdot 10^{11}$	$9,8 \cdot 10^{11}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	$3,3 \cdot 10^{12}$
	быстрых (0,2...14 МэВ)	$2,3 \cdot 10^{11}$	$4,6 \cdot 10^{11}$	$9,2 \cdot 10^{11}$	$2,0 \cdot 10^{12}$	$3,1 \cdot 10^{12}$

Максимальный набранный флюенс нейтронов равнялся $8,4 \cdot 10^{12}$ нейтр./см², в том числе $3,1 \cdot 10^{12}$ нейтр./см² по быстрым нейтронам (для образца P5H). После завершения облучения образцов проводилось исследование их физико-химических свойств (плотности, вязкости) и химического состава.

Измерение плотности образцов жидкости проводилось гравиметрическим (весовым) методом с использованием лабораторных электронных весов 1-го класса

точности ЛВ-210. Измерение кинематической вязкости проб жидкости проводилось с использованием капиллярных стеклянных вискозиметров ВПЖ-2. Результаты измерений физико-химических свойств исходной жидкости ФМ-1 и облученных образцов представлены в табл. 3.

Таблица 3

Результаты измерения вязкости и плотности проб жидкости ФМ-1

Образец	Плотность при 20 °С, кг/м ³	Вязкость кинематическая при заданной температуре, мм ² /с				
		20 °С	38 °С	50 °С	70 °С	99 °С
Исходная жидкость	1076	267	68	36	17,0	8,1
P1H	1092	261	67	36	16,9	7,9
P2H	1070	276	68	36	17,0	8,0
P3H	1087	284	68	37	17,0	8,0
P4H	1083	260	68	37	17,7	8,0
P5H	1086	281	68	37	17,1	8,0

Представленные в табл. 3 результаты измерений, свидетельствуют о том, что в инертной атмосфере воздействие потока нейтронов до флюенса $8,4 \cdot 10^{12}$ нейтр./см² не оказывает влияния на физико-химические свойства образцов жидкости ФМ-1.

Исследование химического состава облученных образцов проводили на жидкостном хроматографе, собранном с использованием элементов хроматографа «Стайер» (насос высокого давления, петлевой инжектор Rheodyne 7710, программно-аппаратный комплекс сбора и обработки хроматографической информации «МультиХром») и УФ-детектора UVV-104V. Разделение исследуемых компонентов проводили на обращенно-фазовой колонке фирмы «Phenomenex» «Luna C-18 5 мкм, 150×4,6 мм». Условия хроматографического разделения компонентов образцов кремнийорганической жидкости ФМ-1: элюент — 100 % ацетонитрил, расход элюента — 1 мл/мин, объем петли — 20 мкл. Измерения проводили при длине волны источника — 254 нм.

Химический состав образцов исходной жидкости ФМ-1 и облученных образцов представлен в табл. 4.

Таблица 4

Химический состав проб жидкости ФМ-1

Вещество		Бензол	Цикл. тример	Лин. димер	Лин. тример	Лин. тетрамер
Относительное содержание компонента, мас. %	Исходная ФМ-1	0,07*	0,06 ± 0,01	0,45 ± 0,09	90 ± 9	9,2 ± 1,4
	P1H	0,07*	0,05 ± 0,01	0,44 ± 0,09	89 ± 9	9,1 ± 1,4
	P2H	0,06*	0,05 ± 0,01	0,44 ± 0,09	88 ± 9	9,0 ± 1,4
	P3H	0,08*	0,05 ± 0,01	0,43 ± 0,09	88 ± 9	9,2 ± 1,4
	P4H	0,07*	0,07 ± 0,01	0,46 ± 0,09	90 ± 9	9,2 ± 1,4
	P5H	0,07*	0,05 ± 0,01	0,44 ± 0,09	88 ± 9	9,1 ± 1,4

Результаты измерений, представленные в табл. 4, позволяют сделать вывод о том, что действие потока нейтронов до флюенса $8,4 \cdot 10^{12}$ нейтр./см² на образцы жидкости ФМ-1 в инертной атмосфере не приводит к заметным изменениям их химического состава.

Таким образом, исследование облученных на стенде образцов позволило сделать вывод, что при монофакторном действии потока нейтронов (до флюенса $8,4 \cdot 10^{12}$ нейтр./см²) жидкость ФМ-1 сохраняет стабильность физико-химических свойств и химического состава.

Результаты

Основными результатами проделанной работы являются:

1. Создание стенда нейтронного облучения с интегральной плотностью потока тепловых нейтронов $2,5 \cdot 10^5$ нейтр./(см²·с), промежуточных — $4,0 \cdot 10^5$ нейтр./(см²·с), быстрых — $3,8 \cdot 10^5$ нейтр./(см²·с).
2. В результате исследования облученных на стенде образцов жидкости показано, что при флюенсе нейтронов до $8,4 \cdot 10^{12}$ нейтр./см² (в том числе быстрых до $3,1 \cdot 10^{12}$ нейтр./см²) жидкость ФМ-1 сохраняет без изменений свой химический состав и физико-химические свойства.
3. Научно-исследовательский потенциал стенда нейтронного облучения не ограничивается работами по изучению свойств жидкости ФМ-1. Перспективным направлением использования созданного стенда является исследование радиационной стойкости моноэтаноламина во втором контуре энергоблока СВБР-100.

Литература

1. Соболевский М. В., Скороходов И. И., Гриневич К. П. Олигоорганосилоксаны. Свойства, получение, применение. М.: Химия, 1985. 264 с.
2. Бажант В., Хваловски В., Ратоуски И. Силиконы. Кремнийорганические соединения, их получение, свойства и применение. М.: ГНТИХЛ, 1960. 711 с.
3. Токарев Ю. И., Чечеткин Ю. В., Гаврилин А. И. Ядерные энергетические установки с органическим теплоносителем. М.: Энергоатомиздат, 1986. 224 с.